

EVIDENCIAS DE CAMBIO DE DIMENSIONALIDAD EN EL MAGNETISMO DEL Gd_2CuO_4

J. MIRA y J. RIVAS

*Área de Electromagnetismo
Departamento de Física Aplicada, Facultade de Física
Universidade de Santiago, E-15706 Santiago de Compostela*

RESUMEN

La transición de fase magnética de una red ordenada en una fase tetragonal ha sido estudiada mediante medidas de magnetización. Concretamente en Gd_2CuO_4 , un material que cristaliza en la estructura T' y que presenta ferromagnetismo débil. Este ferromagnetismo débil está generado en el material a partir de un pequeño alabeamiento en la estructura antiferromagnética perfecta de los momentos magnéticos de los iones de cobre. Este alabeamiento produce una componente magnética neta que permite el estudio del estado magnético de la subred de cobre a través de medidas simples. Se calculan los exponentes críticos de la transición de fase del compuesto, y se obtienen $\gamma = 1.32(2)$ y $\beta = 0.34(1)$, valores que indicarían, a priori, un estado tridimensional del sistema. No obstante, se observa una rápida y sorprendente evolución del valor del exponente crítico β , por debajo de la temperatura crítica, hacia un comportamiento bidimensional. Este hecho es tomado como evidencia de un comportamiendo bidimensional XY en los planos CuO_2 que desencadena, en las cercanías del punto crítico, un comportamiento tridimensional debido al efecto de una débil interacción entre planos a lo largo del eje c de la fase T' .

Palabras clave: Magnetismo, magnetismo de baja dimensionalidad, ferromagnetismo débil, transiciones de fase magnéticas, fenómenos críticos.

ABSTRACT

The magnetic phase transition of an ordered tetragonal lattice is studied by means of dc-magnetization measurements. Namely in Gd_2CuO_4 , a material that crystallizes in the T'-phase and that presents weak ferromagnetism. Such weak ferromagnetism is generated after a little tilting of the perfect antiferromagnetic structure of the Cu magnetic moments. The tilting creates a net magnetic component that allows us the analysis of the magnetic state by simple techniques. The critical exponents of the phase transition in the compound are calculated to be $\gamma = 1.32(2)$ and $\beta = 0.34(1)$, indicating, in principle, a tridimensional (3D) state of the copper sublattice. Nevertheless, a rapid and surprising trend of β , decreasing towards a two-dimensional (2D) value, is observed below the critical point. This fact is taken as an evidence of a XY two-dimensional behaviour in the CuO_2 planes, that causes, in the vicinity of the critical point, a tridimensional behaviour due to the perturbation of a weak interlayer coupling along the c-axis of the T' structure.

Key words: Magnetism, low dimensional magnetism, weak ferromagnetism, magnetic phase transitions, critical phenomena.

INTRODUCCION

El análisis de las transiciones de fase es un tópico de gran interés en la física tanto desde el punto de vista teórico (Baxter, 1982) como experimental. Como contribuciones importantes en este campo pueden destacarse los trabajos de Ising (1925), Van Hove (1950), Griffiths (1964) y Wilson (1971). Entre ellas, la famosa aportación de Onsager en 1944 (con modificaciones posteriores de Kaufmann en 1949) solucionó el problema del modelo de Ising en dos dimensiones y marcó un hito en la teoría de los fenómenos cooperativos, al ser el primer sistema con una transición de fase a temperatura finita resoluble analíticamente¹. El que

¹Otros son el modelo ferroeléctrico, el de ocho vértices y el de tres espines.

este caso sea resoluble sólo bajo condiciones de campo externo nulo da una idea de la complejidad del problema. De hecho, muchas de las abstracciones matemáticas generadas en el análisis del problema han tomado en ocasiones su propio camino y generado temas de investigación propios. Por ejemplo, la autosimilaridad o invariancia de escala del punto crítico fue el germen de la teoría del grupo de renormalización (Wilson, 1971).

Cuando el límite de la teoría es alcanzado, la capacidad experimental de la física se hace decisiva. En el estudio de las transiciones de fase el magnetismo juega un papel importante, puesto que una red cristalina ordenada magnéticamente ofrece una estructura casi ideal para ser modelada. Ahora bien, habíamos dicho que el límite teórico aparece ya en los casos de dos dimensiones. ¿Cómo realizar tal sistema en un mundo tridimensional? La respuesta comenzaron a darla hace tres décadas Birgeneau, Guggenheim y Shirane (1970), quienes encontraron que el K_2NiF_4 presentaba un orden magnético básicamente de dos dimensiones. En este material, los momentos de Ni están dispuestos en planos NiF_2 separados entre sí, lo que favorece la desaparición de la interacción en una de las tres direcciones. Esto permitió observar la primera transición de fase bidimensional de la naturaleza.

Después de ese descubrimiento se encontraron diversos sistemas análogos, entre ellos los R_2CuO_4 con R = lantánido, que cobraron un inusitado interés después del descubrimiento de la superconductividad de alta temperatura crítica en materiales similares (Bednorz y Müller, 1986). En estos sistemas el Cu es el principal elemento responsable del ordenamiento magnético, al acoplarse con sus homólogos a través de átomos de oxígeno, en un mecanismo de origen cuántico conocido como superintercambio (Anderson, 1959). En la estructura tetragonal en la que cristalizan algunos de los R_2CuO_4 (Figura 1), los átomos de Cu están dispuestos en planos CuO_2 , que a su vez están separados entre sí (Kubat-Martín, Fisk y Ryan, 1988). La consecuencia es que los átomos de cobre interaccionan fuertemente con los primeros vecinos de un mismo plano y presentan una interacción débil entre planos, lo que implica que este sistema es un buen candidato a ser bidimensional magnéticamente. Traduciendo la situación al lenguaje matemático se obtiene que ésta viene descrita por el llamado modelo de Heisenberg (1928).

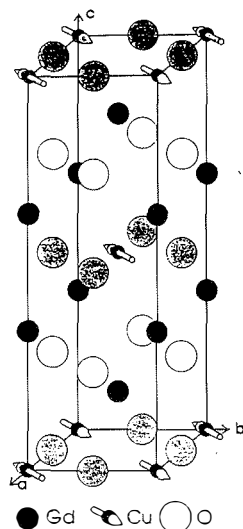


Figura 1: Representación de la estructura tetragonal T' del Gd_2CuO_4 . Se representan también los momentos magnéticos correspondientes a los sitios de cobre (Stepanov et al., 1993). Nótese la diferencia de distancia entre los sitios de cobre dentro de los planos ab y entre diferentes planos encontrados en la dirección del eje c. Ello hace que la interacción entre momentos de cobre dentro de planos CuO_2 (planos ab), descrita por una constante J_{paralelo} , sea muy superior a la existente de plano a plano en la dirección del eje c, descrita por una constante de acoplamiento $J_{\text{perpendicular}}$.

$$H = -\sum_{i,j} J_{ij} S_i S_j + H \sum_i S_i \quad (1)$$

donde J_{ij} es la constante de acoplamiento (integral de intercambio²) entre dos momentos de espín S_i y S_j y H un campo magnético aplicado. Ahora bien, como es bien conocido, pese a la aparente simplicidad de ese hamiltoniano su solución no es ni mucho menos trivial. La imagen “mental” que los físicos se hacen de dos subredes acopladas antiferromagnéticamente, no es un autoestado de la ecuación (1), al ser los conmutadores de espín distintos de cero. Así los espines fluctúan alrededor de una dirección promedio en vez de estar perfectamente

² $J_{ij} < 0$ favorece una disposición antiparalela de los momentos de espín S_i y S_j , es decir, el antiferromagnetismo y $J_{ij} > 0$ una disposición ferromagnética.

alineados. Para ajustar esa imagen “mental” a un resultado se recurre a teorías de campo medio con $\langle S_i^+ = S_x + iS_y \rangle = \langle S_i^- = S_x - iS_y \rangle = 0$, quedando, por tanto, sólo la componente z del operador de espín. Los resultados alcanzados en este caso se reducen al brillante teorema de Mermin y Wagner (1966), quienes, explotando la desigualdad de Bogoliubov³ (1962), demostraron que la susceptibilidad alterna de un sistema descrito por el hamiltoniano de Heisenberg sólo ocurre a cero absoluto, todo ello en el caso isótropo, o sea, con $|J_x| = |J_y|$, donde x e y representan los ejes de coordenadas del plano.

Al trasladarse al plano experimental, el problema radica en la baja señal magnética de la red ordenada de cobre: el ordenamiento es antiferromagnético, es decir, una disposición antiparalela de los momentos magnéticos individuales, con lo cual la resultante será cero. En este trabajo se tratará de soslayar esa dificultad para analizar la transición de fase de un sistema bidimensional de planos CuO_2 .

IDEA PROPUESTA

Como se ha comentado previamente, la estructura de planos de cobre impuesta por la estructura tetragonal representada en la Figura 1 llevaría a un momento neto nulo. No obstante, si el radio atómico del lantánido sustituido, R , se va haciendo cada vez más pequeño (es decir, si se aumenta el número atómico), llegará un momento en el cual la distancia del enlace Cu-O(1)-Cu (véase Figura 2) no sea la suficiente para mantener la linealidad de éste. En ese momento el oxígeno se desplazará perpendicularmente a la línea Cu-Cu (Oseroff et al., 1990; Adelman et al., 1992) (Figura 3). Ello conlleva la aparición de un término antisimétrico en el hamiltoniano de superintercambio, a primer orden en la interacción espín-órbita, que resulta en un término extra de la forma

$$H^{DM} = D(S_i \times S_k) \quad (2)$$

³ La idea se les ocurrió tras el éxito de Hohenberg en demostrar que esa desigualdad se podía emplear para excluir el orden convencional de superfluidos y superconductores en dos dimensiones.

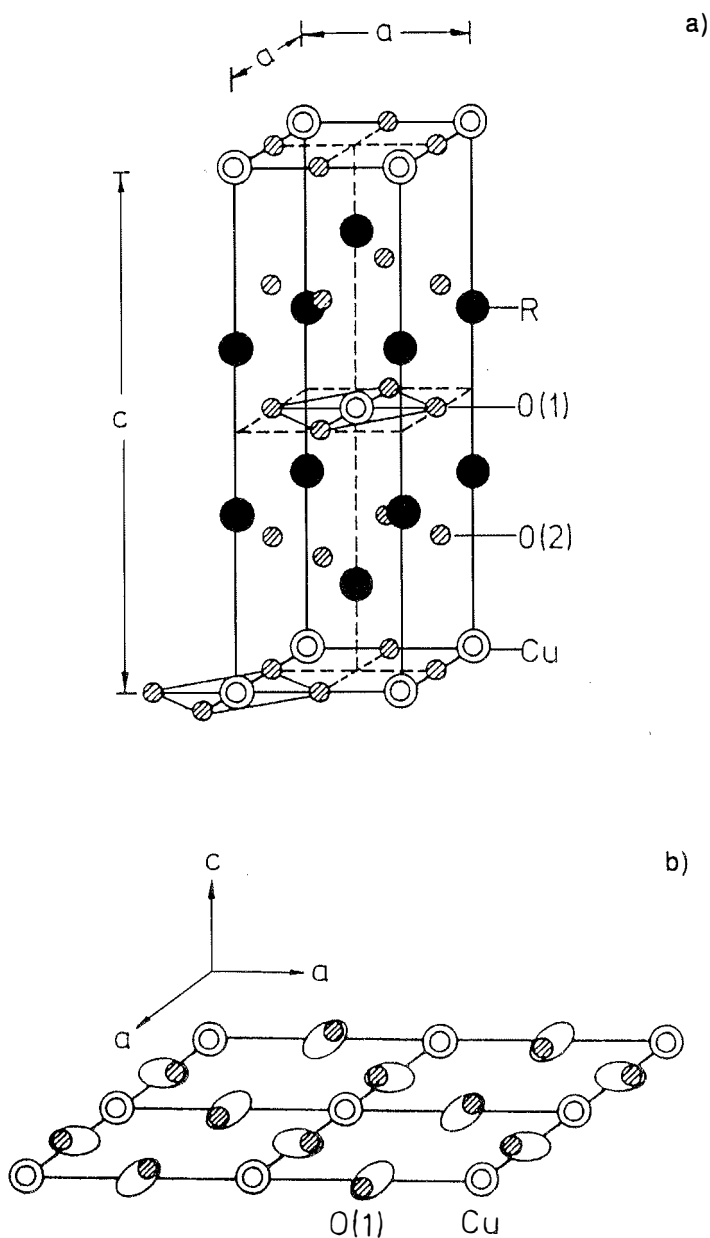


Figura 2: a) Representación de un apilamiento ideal del Gd_2CuO_4 en una estructura tetragonal T' . En este caso los enlaces Cu-O(1)-Cu son lineales. b) Al reducir el tamaño en el sitio R la red se contrae y la distancia Cu-O(1)-Cu se hace menor que la exigida por los radios iónicos de los iones implicados para mantener la linealidad, con lo cual el oxígeno se desplaza de su posición ideal.

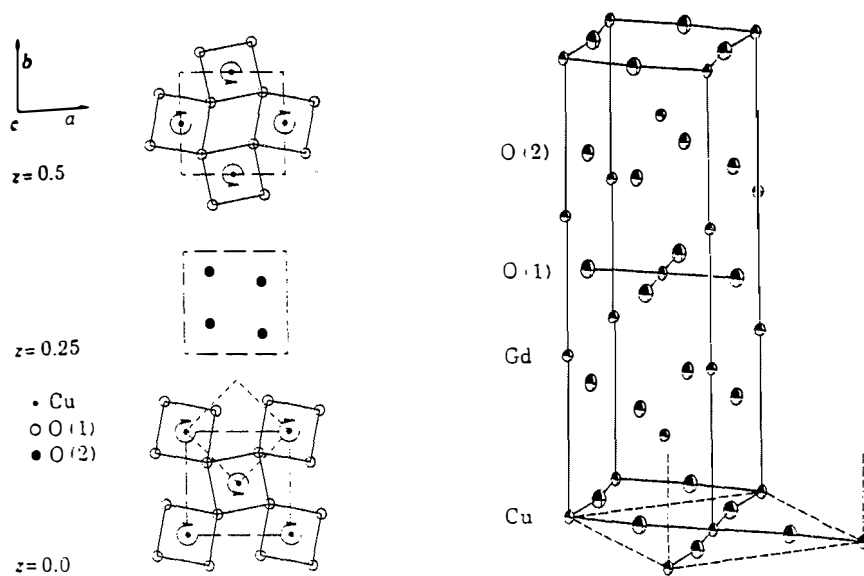


Figura 3: Estructura cristalina del Gd_2CuO_4 , incluyendo la distorsión de las posiciones de oxígeno. A la izquierda, representación del apilamiento de los planos CuO_2 que están distorsionados en forma de rotación de los cuadrados formados por los oxígenos alrededor del eje c . Las líneas discontinuas cortas muestran la celda unidad para la fase T' y las largas la celda de una fase ortorrómbica. A la derecha, representación de la estructura del Gd_2CuO_4 . Las líneas continuas corresponden a la celda unidad en la fase T' , las discontinuas dan la celda unidad de la fase Acam , que es la que describe realmente el sistema (Braden et al., 1994).

derivado originalmente por Dzyaloshinskii (1958), justificado posteriormente por Moriya (1960) y estudiado experimentalmente por Borovik-Romanov y Ozhogin (1960). Este término tiene el efecto de alabeo la estructura antiferromagnética de los momentos de cobre, creando por tanto una resultante no nula de momento magnético (figura 4). \mathbf{D} es un pseudovector que representa la magnitud del alabeo y es paralelo al producto vectorial $\mathbf{S}_i \times \mathbf{S}_k$. El fenómeno así producido se conoce como ferromagnetismo débil (FD). Esa componente ferromagnética débil polariza el sitio del lantánido, crea un campo magnético interno en él (Figura 5) y genera una señal que ya es medible por magnetometría (Mira et al., 1994a; 1994b) o por resonancias (Fainstein, Butera y Tovar, 1994; Mira et al., 1996b). Este es el punto crucial de este trabajo, ya que a través de medidas de magnetización en estos materiales tan peculiares

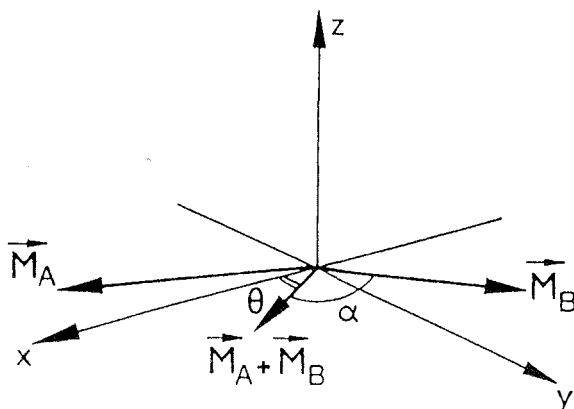


Figura 4: Resultado del alabeamiento de una estructura antiferromagnética: se crea una resultante no nula de momento magnético que es la suma vectorial de los momentos alabeados en dos sitios contiguos de la red. El pseudovector \mathbf{D} , representante de la magnitud del ferromagnetismo débil resultante, iría según el eje z en el ejemplo de la figura.

podremos tener información indirecta del estado de los planos de CuO_2 . Este planteamiento ya ha sido tenido en cuenta para el análisis de la dinámica de clústeres ferromagnéticos en los planos (Mira et al., 1995a).

Al ir aumentando el número atómico nos encontramos que para $R=\text{Gd}$ se produce ya esa distorsión; lógicamente, para lantánidos de mayor número atómico también ocurre (Mira, 1997). Además, el Gd_2CuO_4 , aparte de ser el primer miembro de la serie R_2CuO_4 con FD, es el único sintetizable a presiones normales (Mira, 1995d), lo que lo convierte en un caso de altísimo interés. Este hecho exige una cierta cautela en la síntesis de muestras, ya que ha sido demostrada la dependencia de la temperatura de tratamiento sobre su respuesta magnética (Mira et al., 1996c). La influencia del tamaño de grano ha sido también analizado en profundidad (Mira et al., 1995b; 1996a; 1996d). El resto de R_2CuO_4 ferromagnéticos débiles sólo se pueden obtener bajo condiciones de alta presión (Bordet, 1991).

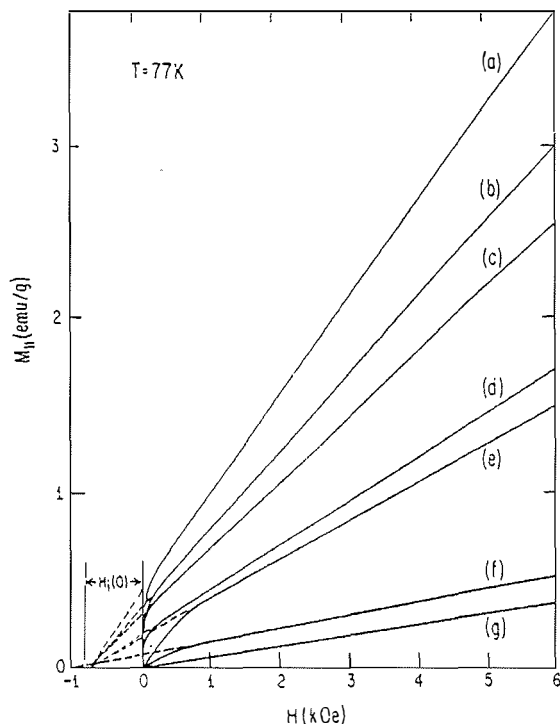


Figura 5: Efecto del ferromagnetismo débil dentro de los planos de cobre en compuestos $R_2\text{CuO}_4$. El lugar de la tierra rara es polarizado, y en medidas de magnetización frente a campo aparece una componente interna de campo magnético que se suma al externo aplicado. Esto crea la curvatura observada en las curvas de la figura, correspondientes a diversos cupratos de la fase T' . a) GdTbCuO_4 , b) EuTbCuO_4 , c) Gd_2CuO_4 , d) EuGdCuO_4 , e) SmGdCuO_4 , f) $\text{Eu}_{1.8}\text{Gd}_{0.2}\text{CuO}_4$ y g) Pr_2CuO_4 .

TECNICAS EXPERIMENTALES

Para las medidas magnéticas se usó un monocristal de Gd_2CuO_4 de 4.7 mg de peso. El crecimiento del cristal se hizo en un crisol de platino usando la técnica de flujo (Thompson et al., 1989). La forma del monocristal es el de una lámina, con 3 mm de largo, 2 mm de ancho y 0.1 mm de grosor, y el eje cristalográfico c está orientado perpendicularmente a la lámina.

Las medidas de magnetización fueron hechas con un magnetómetro de muestra vibrante y con un Superconducting Quantum Interferometer Device (SQUID). El magnetómetro de muestra vibrante es un VSM 1660

de Digital Measurement Systems, que opera entre ± 14000 Oe, de lectura digital y conectado a un sistema de control Hewlett-Packard. La calibración se hizo con una muestra estándar de níquel de magnetización conocida a 10000 Oe. El control de temperatura se consigue a través de un sistema abierto de flujo de nitrógeno, entre 77 y 673 K. La precisión de temperatura va desde un grado entre 77 y 120 K (exceptuando el punto fijo de nitrógeno líquido) a 0.2 grados a temperatura ambiente. El nivel de ruido de la señal medida es del orden de 10^{-5} emu. El magnetómetro SQUID es un modelo de Quantum Design, operativo entre ± 5.5 T e 2 e 300 K, con una precisión en temperatura del orden de 0.1 K.

RESULTADOS

En primer lugar se realizaron medidas de magnetización frente a temperatura para obtener una primera estimación del punto crítico. Se efectuaron en una dirección perpendicular al eje c (paralela a la lámina por tanto), puesto que la anisotropía creada por la componente ferromagnética débil se encuentra dentro de los planos de CuO_2 (planos ab), tal y como se demuestra en las medidas de magnetización frente a ángulo de la Figura 6 (Mira, 1995c). El punto crítico es reconocible por el pico en la magnetización de bajo campo (Figura 7), típico de materiales ferromagnéticos débiles (Thompson et al, 1989; Oseroff et al, 1990; Thio y Aharony, 1994; Mira et al., 1994b). Según los datos obtenidos, el punto crítico se encuentra a una temperatura de 268 K. Este valor difiere apreciablemente del obtenido en muestras cerámicas (Mira et al., 1996c), donde ocurre a 284 K, probablemente debido a contaminaciones de platino durante el proceso de síntesis de los monocristales (Z. Fisk, comunicación privada). De estos datos se extrajo la susceptibilidad inicial definida como

$$\chi_i(T) = dM_{dc}(H)/dH_{|H \rightarrow 0} \quad (3)$$

por encima del punto crítico. A esta señal se le restó la contribución de la susceptibilidad paramagnética de los iones Gd^{3+} , es decir un término de la forma,

$$2C/(T+\theta) \quad (4)$$

tomando como constante de Curie $C = 7.94 \mu\text{B}/\text{átomo}$ y $\theta \sim 12 \text{ K}$ (Thompson et al, 1989). El valor de 7.94 magnetones de Bohr corresponde al estado libre del ión (momento angular nulo y momento de espín $7/2$). También se restó la susceptibilidad diamagnética de los diferentes iones. Debería restarse además un término debido a la polarización de la componente ferromagnética débil sobre el sitio de la tierra rara (Fainstein, Tovar y Fisk, 1992; Fainstein, 1993a; Fainstein et al., 1993b), pero debido al método de cálculo de los exponentes críticos que se utilizará, esta componente es irrelevante, como se constatará más adelante.

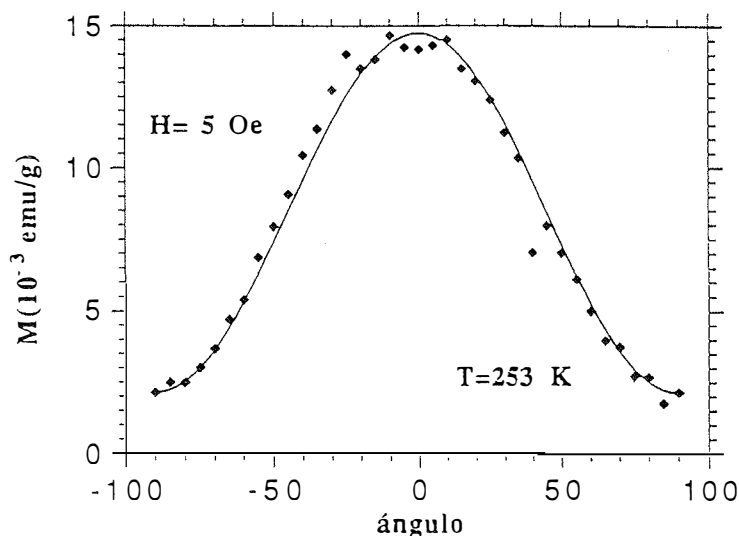


Figura 6: Magnetización frente a ángulo para el monocristal de Gd_2CuO_4 a una temperatura de 253 K y un campo magnético de 5 Oersted. El ángulo cero corresponde a un alineamiento paralelo a los planos CuO_2 .

De acuerdo con la ecuación de estado del sistema, en la región crítica resulta:

$$\left(\frac{H}{M}\right)^{\frac{1}{\gamma}} = \frac{T - T_C}{cte.} + M^{\frac{1}{\beta}} \quad (5)$$

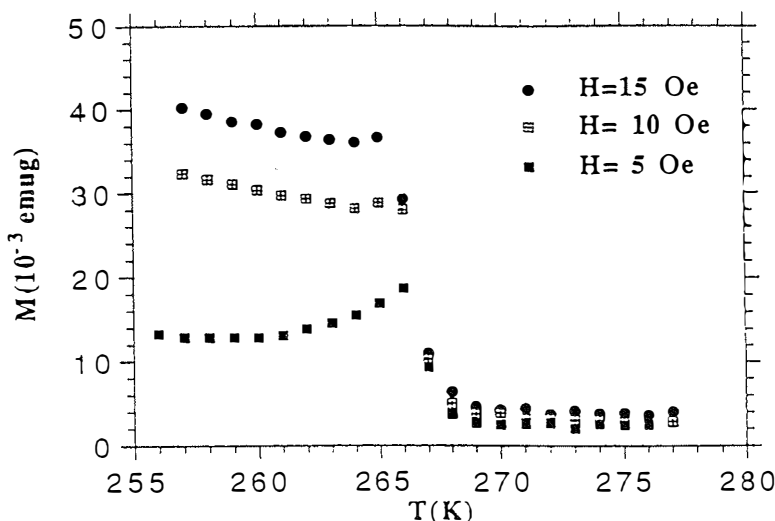


Figura 7: Curvas de magnetización frente a temperatura, a diferentes campos magnéticos aplicados, del monocristal de Gd_2CuO_4 usado en este trabajo. La magnetización está medida aplicando el campo magnético en una dirección perpendicular al eje c , es decir, paralelo a los planos CuO_2 . Nótese el pico que aparece a campos bajos a una temperatura de 268 K, indicativo de la existencia de la transición de fase ferromagnética débil.

de donde se derivan, de las condiciones de escala, las relaciones:

$$\chi_i(T) \propto |T - T_c|^{-\gamma}, \quad T > T_c \quad (6)$$

$$M^{1/\beta} \propto (H/M)^{1/\gamma}, \quad T < T_c \quad (7)$$

donde β y γ son los llamados exponentes críticos de la transición de fase. Los valores de estos exponentes dependen de la dimensión y estructura del sistema, teniendo en cuenta interacciones de corto alcance entre los elementos que lo forman (Fisher, Ma y Nickel, 1972), independientemente de su naturaleza. Por lo tanto, la determinación de estos exponentes da información directa sobre la dimensionalidad del ordenamiento de cualquier sistema. En el caso que nos ocupa, tenemos una red de momentos magnéticos ligados por una interacción de superintercambio,

que es una interacción de corto alcance (cada ión actúa, principalmente, sólo sobre sus primeros vecinos), y podremos efectuar el análisis de los exponentes críticos con la tranquilidad de obtener valores comparables con la teoría.

Con objeto de calcular el valor de γ , haciendo el logaritmo de la expresión (6) se tiene que

$$\log \chi_i(T)^{-1} \propto \gamma \log |T - T_c| \quad (8)$$

donde la pendiente de esta recta es igual a γ (Figura 8).

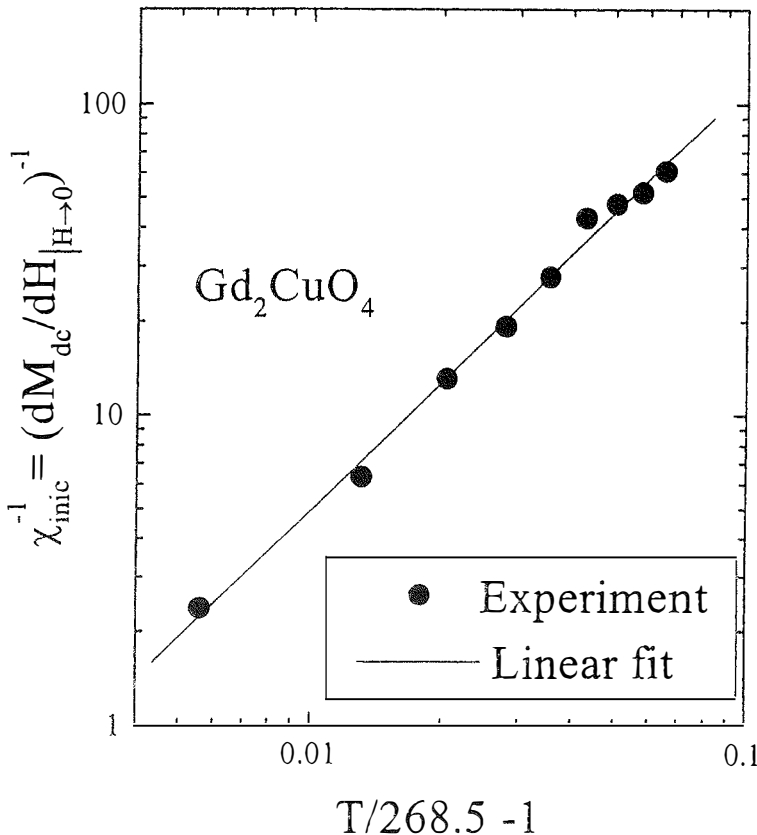


Figura 8: Representación, en escala logarítmica, de la inversa de la susceptibilidad inicial del monocristal de Gd_2CuO_4 frente a la temperatura reducida, por encima del punto crítico. Del ajuste a una recta de los datos experimentales se obtiene un valor del exponente crítico $\gamma = 1.32(2)$.

Por otro lado, haciendo el logaritmo de la expresión (7) y pasando la magnetización, M , al primer miembro:

$$\log M^{1/\beta+1/\gamma} \propto \log H^{1/\gamma} \quad (9)$$

resulta una representación logarítmica de magnetización frente a campo magnético (Figura 9) con una pendiente igual a un cociente función de

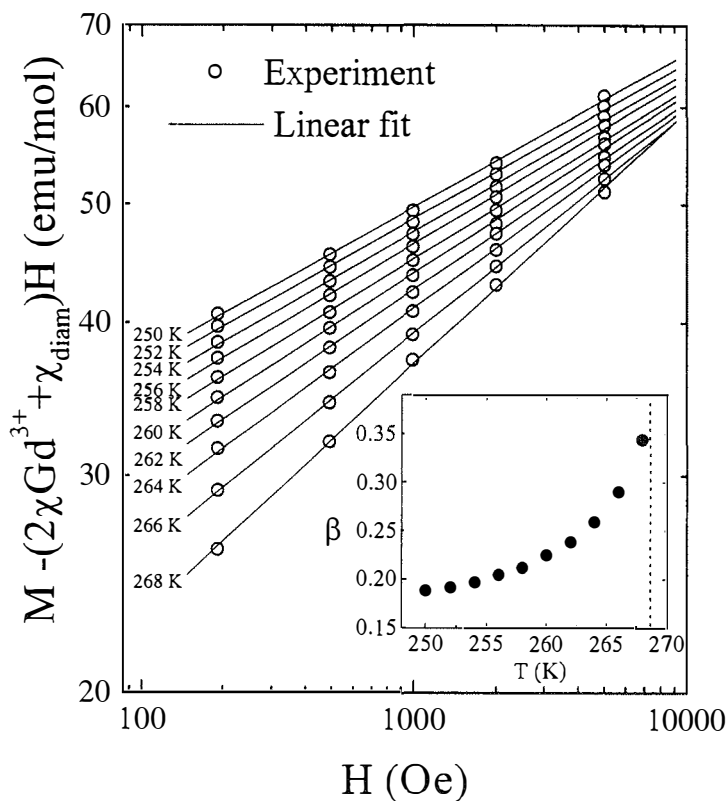


Figura 9: Representación, en escala logarítmica, de la magnetización corregida del monocristal de Gd_2CuO_4 frente a campo magnético entre 250 y 268 K. A partir de los ajustes lineales de los datos experimentales de cada isoterma, e introduciendo el valor de γ calculado previamente, se obtienen valores de β para cada temperatura. La polarización de la subred de Cu en el sitio de la tierra rara no afecta a la pendiente de las líneas, de las cuales se calcula b . Inserto: representación de los distintos valores de β frente a temperatura. Éstos van desde 0.19(1) a 0.34(1), casi 1/3, lo que indica un cambio de carácter bidimensional a tridimensional del sistema en el entorno del punto crítico.

sus exponentes. Este método es conocido como técnica de Arrott modificada (Kaul, 1985), basada en las relaciones dadas por Arrott y Noakes (1967). Por lo tanto, tras haber calculado γ del ajuste a una recta como en (8) se podrá despejar el valor de β , simplemente de despejar su valor de la pendiente de la recta ajustada según (9).

Las representaciones log-log hacen que el término de polarización ferromagnético débil sobre el sitio de la tierra rara no contribuya más que como un cambio de ordenada. De esta forma, el no restar esta contribución no afecta para nada a la pendiente de las rectas ajustadas, de las cuales se extraen los exponentes críticos.

Al representar los datos experimentales, tanto de susceptibilidad inicial por encima de T_c como de magnetización por debajo de T_c , en el modo antes expuesto, y al ajustar los puntos experimentales a rectas se obtiene, en primer lugar, el valor de γ a partir de la Figura 8. Este resulta ser $\gamma = 1.32(2)$.

A partir de datos de isothermas de magnetización frente a campo se puede calcular un exponente β a varias temperaturas cerca del punto crítico. Eso se ha hecho a partir de 250 K, y de los ajustes de las isothermas se han obtenido varios valores de β cerca del punto crítico, los cuales se representan en el inserto de la Figura 9.

DISCUSION

La señal magnética del Gd_2CuO_4 se hace apreciable macroscópicamente en el momento en el que el sistema se acopla totalmente en tres dimensiones (Mira, 1995c; Mira et al., 1995d). En medidas de magnetización frente a temperatura ese hecho ocurre en la temperatura a la cual se produce el pico de magnetización a bajo campo (en teoría sería en el límite a campo cero). Ese punto será asociado pues al del ordenamiento completo de la subred de los momentos de cobre. La naturaleza del acoplamiento de los átomos de cobre en los sistemas R_2CuO_4 ha sido un tema de enorme controversia (Anderson, 1987; Chakravarty, Halperin y Nelson, 1989; Manousakis, 1991), y el número de experimentos realizados, sobre todo de difracción de neutrones, es elevado (Thurston et al., 1990; Yamada et al., 1990), incluso en compuestos relacionados (Vaknin et al., 1990). La separación entre los planos CuO_2 hace que la diferencia entre el valor de acoplamiento (a

través del mecanismo de superintercambio) dentro del plano, J_{paral} , y entre planos contiguos, J_{perp} , sea muy importante. De Jongh y Miedema (1974) han señalado que para la observación de un comportamiento efectivo de carácter bidimensional (2D) la razón entre las intensidades de esos acoplamientos debe ser tal que $J_{\text{paral}}/J_{\text{perp}} > 100$. En el caso del Gd_2CuO_4 las estimaciones de J_{paral} y J_{perp} son de 1500 K y 2.3 mK respectivamente (Shirane et al., 1987; Butera et al., 1995), es decir $J_{\text{paral}}/J_{\text{perp}} > 6 \cdot 10^5$. Esto significa que el material que nos ocupa es un buen candidato para exhibir comportamiento bidimensional. Los miembros de la serie R_2CuO_4 deberían ser incluso sistemas netamente más 2D, con razones entre las constantes de acoplamiento paralelo y perpendicular aún mayores, debido a la cancelación de los campos efectivos de superintercambio entre planos contiguos, al no exhibir estos materiales una componente ferromagnética débil dentro de los planos (Matsuda et al., 1990).

En este marco, deberían comenzar a existir correlaciones 2D apreciables bastante por encima del punto crítico, hasta que a temperaturas entre 240 y 290 K se produjese el ordenamiento global de la subred de Cu (Endoh et al., 1989; Shantakumar et al., 1991). En el sistema K_2NiF_4 , prototipo en el estudio de materiales de estructura T' , se observó un proceso análogo hace tres décadas (Birgeneau, Guggenheim y Shirane, 1970). En su momento se interpretó como un cambio o «crossover» de comportamiento 2D a 3D. Por analogía con este caso se propuso un crossover similar para los materiales R_2CuO_4 , lo que dio lugar a algunos intentos de explicación del fenómeno indagando en el papel del acoplamiento interplanar (Xue et al., 1988; Thio et al., 1988; Cheong, Thompson y Fisk, 1989; Singh et al., 1990, 1991; Soukoulis, 1991). Un crossover de este estilo no es una transición de fase propiamente dicha. Nuestra impresión es que en la temperatura a la cual se produce el pico de magnetización tiene lugar una auténtica transición de fase, que viene provocada por el ordenamiento progresivo de los momentos de cobre.

Debemos hacer una salvedad en este punto, y es que, de acuerdo con la teoría clásica del ferromagnetismo débil (Herpin, 1968), la temperatura crítica del sistema ferromagnético débil no es exactamente la temperatura crítica (también llamada de Néel) del sistema de cobres sin distorsión, es decir, con un orden antiferromagnético (antiparalelo) de momentos de cobre, sin ningún tipo de canteo. Concretamente, si

llamamos T_N a la temperatura de Néel del sistema antiferromagnético ideal, se cumple por definición que $T_N = C'J$ (C' es una constante y J la constante de acoplamiento antiferromagnético⁴), entonces el punto crítico del sistema ferromagnético sería $T_c = \sqrt{(J^2 + D^2)}$, donde $D = 2J\phi$, con ϕ el ángulo de desvío del ordenamiento antiparalelo (imperfecto en este caso) de los momentos magnéticos del cobre, que en el caso que nos ocupa es del orden de $0.5(2)^\circ$ (Rouco et al., 1994). Si se introduce un valor aproximado para J de 1500 K llegamos a que la corrección sobre la que sería la T_N ideal no llega al 1%. Por lo tanto, se ve claramente que la componente ferromagnética débil afecta muy escasamente al punto de ordenamiento de la subred de Cu y la discusión sobre el punto de ordenamiento del sistema antiferromagnético ideal puede hacerse en la base del punto crítico del sistema ferromagnético débil. Es en este momento donde nuestra idea toma sentido completo, puesto que nos podemos aprovechar de la señal fácilmente medible de un sistema ferromagnético débil como el Gd_2CuO_4 para discutir sobre el ordenamiento magnético de un plano de CuO_2 ideal.

Al igual que en los materiales R_2CuO_4 sin ferromagnetismo débil, habrá correlaciones magnéticas apreciables de carácter bidimensional por encima del punto crítico. La existencia de correlaciones bidimensionales, detectable en los sistemas antiferromagnéticos puros de la serie R_2CuO_4 sólo a través de delicadísimas medidas de difracción de neutrones, puede ser medida, en nuestro caso, a través de la inducción de ferromagnetismo débil por encima del punto crítico causada por la aplicación de un campo magnético externo. En Gd_2CuO_4 se ha observado tanto por medidas de magnetización frente a campo (Figura 10) como de resonancia paramagnética electrónica (Figura 11). La prolongación en el Gd_2CuO_4 es de más de 50 K (Stern et al., 1993). Esta extensión en un rango de temperaturas tan notable sólo puede ser justificable por la existencia de esas correlaciones 2D (en un sistema magnético ordenado normal esta extensión sería como mucho de unos pocos grados por encima de T_c).

Los exponentes críticos, $\gamma = 1.32(2)$ y $\beta = 0.34(1)$, éste último a $T = T_c = 268$ K, difieren de los dados por Rouco et al. (1994) para el Y_2CuO_4

⁴Esa igualdad constata simplemente que cuando la energía térmica se hace igual a la del acoplamiento magnético el sistema se desordena.

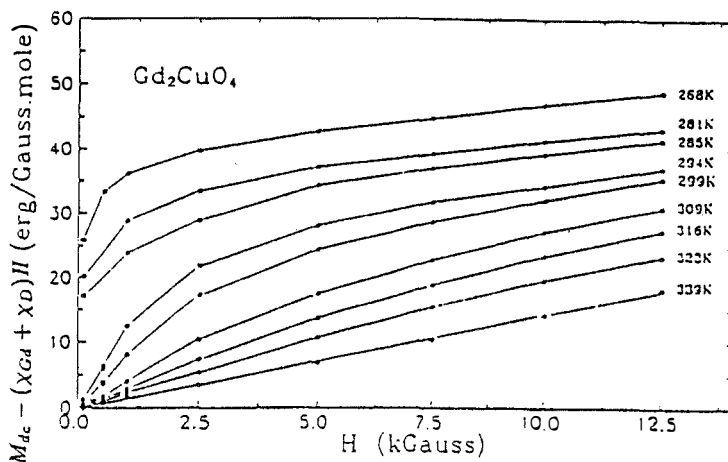


Figura 10: Magnetización corregida frente a campo magnético, a diversas temperaturas en torno del punto crítico (en este caso 284 K), de una muestra policristalina de Gd_2CuO_4 . Incluso por encima del punto crítico las curvas evidencian la existencia del campo interno creado por el ferromagnetismo débil generado por la subred de cobre, lo que indica la existencia de un ordenamiento global por la acción del campo externo.

(esos autores obtienen 1.10 y 0.53 respectivamente), e indican que el sistema puede ser descrito por el modelo de Heisenberg en tres dimensiones (los valores de tal modelo están perfectamente calculados y son $4/3$ y $1/3$ respectivamente, muy cercanos a los medidos en este trabajo).

No obstante, del inserto de la Figura 9, vemos que el valor de β evoluciona muy rápidamente en las cercanías del punto crítico, lo cual no es esperable, ya que en el intervalo $1-T/T_c < 0.06$ las representaciones log-log dan valores de este exponente crítico que pueden ser comparados con la teoría, y el valor de β debería seguir tomando el valor que tenía en T_c . Debemos tomar pues los valores de β extrapolados de isothermas medidas en ese intervalo alrededor del punto crítico como reales físicamente. Nos encontramos entonces ante la paradoja de que el sistema, aunque exhibe un comportamiento claro 3D en el punto crítico, parece perderlo muy cerca de éste. Más aún, a 250 K $\beta = 0.19(1)$, lo cual está muy cerca del valor calculado teóricamente para el llamado modelo XY-bidimensional o incluso del modelo de Ising en dos dimensiones ($\beta = 1/8$). En cualquier caso, parece claro que el sistema es, por debajo del

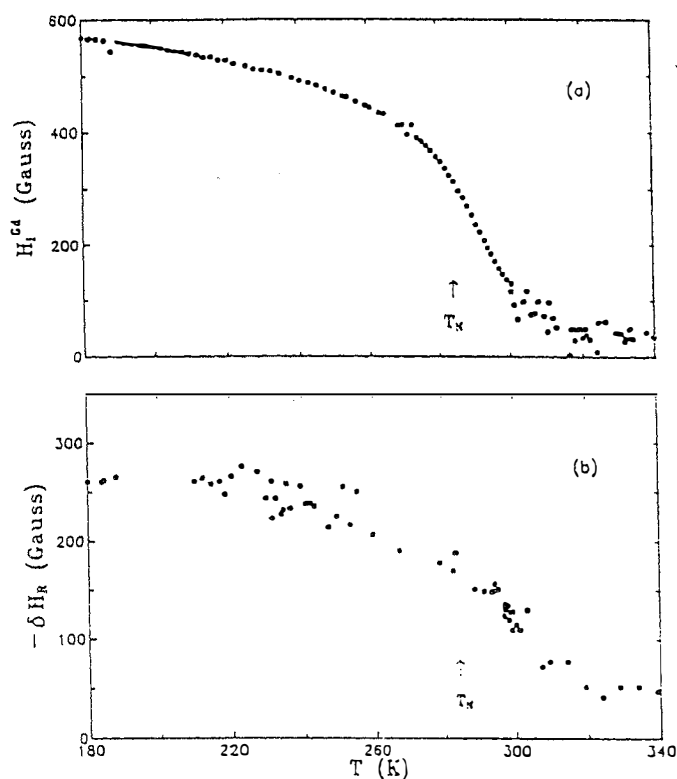


Figura 11: a) Campo interno en el sitio del gadolinio para una muestra de Gd_2CuO_4 , extrapolado de las medidas de magnetización frente a campo de la figura 10. Sigue siendo distinto de cero incluso por encima del punto crítico. b) Desplazamiento de la línea de EPR del Gd^{3+} en banda X para el monocristal de Gd_2CuO_4 . El resultado es coherente con la figura a) y es indicativo de la existencia de un estado ferromagnético débil macroscópico inducido con el campo externo por encima del punto crítico.

punto crítico, de carácter bidimensional, y sólo al acercarse al punto crítico cambia a un valor tridimensional de un sistema Heisenberg. Esto puede tener su explicación considerando el sistema como bidimensional de partida. En ese caso, si existiese un término de anisotropía magnética (descrito convencionalmente por un campo H_A), de modo que $g\mu_B H_A \gg J_{\text{perp}}$, el sistema se comportaría eminentemente como 2D en todo el rango de temperatura, excepto en la temperatura crítica, en la que el sistema, a punto de desordenarse, vería la perturbación del acoplamiento entre

planos (descrito por J_{perp}) como significativa, activándose en ese momento la interacción en esa tercera dimensión de la red. Este término de anisotropía planar es muy posible en el sistema (Butera et al., 1995) y además permitiría la existencia de un cierto ordenamiento bidimensional por encima del punto crítico, explicando la prolongación anómala de ferromagnetismo débil observada con un campo magnético externo aplicado para $T > T_c$. Si esa anisotropía no existiese, el ordenamiento bidimensional sería imposible, tal y como establece el conocido teorema de Mermin y Wagner (1966). Nuestra conclusión es, pues, que el carácter 3D en el Gd_2CuO_4 se activa a través del peso significativo que toma la débil interacción entre planos contiguos (descrita por J_{perp}) en el momento de una transición que, necesariamente se estaría produciendo en los planos de CuO_2 . Por debajo del punto crítico el sistema retornaría a su comportamiento bidimensional predominante. Matsuda et al. (1990) ya habían dejado entrever un mecanismo parecido al señalado en este trabajo, señalando valores de anisotropía dentro del plano, J_{XY} , del orden de $J_{\text{XY}}/J_{\text{paral}} \approx 1.4 \cdot 10^{-4}$ para el Nd_2CuO_4 , para explicar la enorme incongruencia que supone que todos los materiales R_2CuO_4 tengan temperaturas de ordenamiento tan similares para la subred de cobre, a pesar de las enormes diferencias observadas en los valores de las interacciones entre planos (J_{perp}).

Ahora bien, en tal escenario, se nos hace imprescindible la existencia de una transición de fase en los planos CuO_2 . ¿De dónde procede? Una posibilidad podría ser la existencia de una transición de fase de comportamiento 2D a otro 2D-XY⁵. Ello haría al sistema extremadamente susceptible, en ese punto crítico de los planos, a cualquier perturbación en la tercera dimensión (según el eje c de la fase T'), que desencadenaría el orden global, constituyendo el conjunto una especie de tricriticalidad como la descrita por Thio y Aharony (1994).

Otra posibilidad podría ser que el aumento de correlaciones bidimensionales en los planos CuO_2 llegase en un cierto punto a ser del orden de $J_{\text{paral}}/J_{\text{perp}}$ momento en el cual los planos vecinos comenzarían a correlacionarse entre sí, de un modo análogo a la solución propuesta para el Rb_2CrCl_4 (Als-Nielsen et al., 1993). En ambas posibilidades la

⁵En el llamado modelo XY, en la interacción de canje descrita por (1) sólo juegan un papel las componentes de espín x e y.

presencia de un comportamiento 2D-XY parece necesaria. Bramwell y Holdsworth (1994a,1994b), a través de simulaciones de Montecarlo han establecido que un exponente crítico $\beta=0.23$ es marca inequívoca de ordenamiento 2D-XY. Dado que nuestros valores de β debajo del punto crítico son de ese orden (inserto Figura 7) concluimos pues que el Gd_2CuO_4 es, por debajo del punto crítico de ordenamiento en tres dimensiones, netamente un sistema bidimensional.

CONCLUSIONES

Se ha analizado, en un material de la fase T' (Gd_2CuO_4), la transición de fase de un sistema ferromagnético débil cuyo origen se debe a una distorsión estructural en planos CuO_2 . A través de la inspección de la señal ferromagnética débil, fácilmente medible por magnetometría, se ha analizado el comportamiento crítico de la subred de Cu. Se observa que, pese a que en el punto crítico el sistema presenta señas de identidad propias de un ordenamiento en 3 dimensiones, a temperaturas un poco más bajas parece mostrar, sorprendentemente, un comportamiento bidimensional. Se propone la existencia de un estado bidimensional XY en los planos CuO_2 como desencadenante, a través de una débil interacción interplano, del ordenamiento global de la subred de Cu en 3 dimensiones.

AGRADECIMIENTOS

Los autores agradecen la cesión del monocristal al Prof. Dr. Zachary Fisk, del Department of Physics de la Florida State University (E.E.U.U.). También desean agradecer a los doctores Alejandro Butera y Laura Beatriz Steren, de la División de Resonancias del Centro Atómico Bariloche - Instituto Balseiro (Argentina) y Juan Manuel García-Beneytez y Manuel Vázquez, del Instituto de Magnetismo Aplicado de Madrid, su ayuda con algunas de las medidas experimentales de este trabajo.

BIBLIOGRAFIA

- ADELMANN, T., AHRENS, R., CZIZEK, G., ROTH, G., SCHMIDT, H. y STEINLEITNER, C., 1992. *Physical Review B* 46, 3619.
- ALS-NIELSEN, J., BRAMWELL, S. T., HUTCHINGS, M. T., MCINTYRE, G. J. y VISSER, D., 1993. *Journal of Physics: Condensed Matter* 5, 7871.
- ANDERSON, P. W., 1959. *Physical Review* 115, 2.
- ANDERSON, P. W., 1987. *Science* 235, 1196.
- ARROTT, A. y NOAKES, J. E., 1967. *Physical Review Letters* 19, 786.
- BAXTER, R. J., 1982. *Exactly solved models in statistical mechanics*, Academic Press (Londres).
- BEDNORZ, J. G. y MULLER, K. A., 1986. *Zeitschrift fur Physik B* 64, 189.
- BIRGENEAU, R. J., GUGGENHEIM, H. G. y SHIRANE, G., 1970. *Physical Review B* 1, 2211.
- BOGOLIUBOV, N. N., 1962. *Physik. Abhandl. Sowjetunion* 6; 1, 113, 229.
- BORDET, P., CAPPONI, J. J., CHAILLOUT, C., CHATEIGNER, D., CHENAVAS, J., FOURNIER, TH., HODEAU, J. L., MAREZIO, M., PERROUX, M., THOMAS, G. y VARELA LOSADA, A., 1992. *Physica C* 193, 178.
- BOROVIK-ROMANOV, A. S. y OZHOGIN, V. I., 1960. *Zh. Eksp. Teor. Fiz.* 39, 27 [*Sov. Phys. JETP* 12, 18 (1961)].
- BRADEN, M., PAULUS, W., COUSSON, A., VIGOUREUX, P., HEGER, C., GOUKASSOV, A., BOURGES, P. y PETITGRAND, D., 1994. *Europhysics Letters* 25, 625.
- BUTERA, A., TOVAR, M. y OSEROFF, S. B., 1995. *Physical Review B* 52, 13444.
- BRAMWELL, S. T. y HOLDSWORTH, P. C. W., 1993. *Journal of Physics: Condensed Matter* 5, L53.
- BRAMWELL, S. T. y HOLDSWORTH, P. C. W., 1994. *Physical Review B* 49, 8811.
- CHAKRAVARTY, S., HALPERIN, B. I. y NELSON, D. R., 1989. *Physical Review B* 39, 2344.
- CHATTOPADHYAY, T., BROWN, P. J., ROESSLI, B., STEPANOV, A. A., BARILO, S. N. y ZHIGUNOV, D. I., 1992. *Physical Review B* 46, 5731.
- CHEONG, S.-W., THOMPSON, J. D. y FISK, Z., 1989. *Physical Review B* 39, 4395.
- De JONGH, L. J. y MIEDEMA, A. R., 1974. *Experiments on single magnetic model systems*, Taylor & Francis, Londres [Reimpresión de *Adv. Phys.* 23, 1 (1974)].
- DZYALOSHINSKII, I., 1958. *J. Phys. Chem. Solids* 4} 241.
- ENDOH, Y., MATSUDA, M., YAMADA, H., KAKURAI, K., HIDAKA, Y., SHIRANE, G. y BIRGENEAU, R. J., 1989. *Physical Review B* 40, 7023.
- FAINSTEIN, A., TOVAR, M. y FISK, Z., 1992. *Journal of Physics Condens. Matt.* 4, 1581.
- FAINSTEIN, A., 1993a. Tesis doctoral, Instituto Balseiro - S. C. de Bariloche (Argentina).
- FAINSTEIN, A., BUTERA, A., ZYSLER, R. D., TOVAR, M., RETTORI, C., RAO, D., OSEROFF, S. B., FISK, Z., CHEONG, S.-W., VIER, D. C. y SCHULTZ, S., 1993b. *Physical Review B* 48, 16775.

- FAINSTEIN, A., BUTERA, A. y TOVAR, M., 1994. *Physical Review B* 50, 16708.
- FISHER, M. F., MA, S.-K. y NICKEL, B. G., 1972. *Physical Review Letters* 29, 917.
- GRIFFITHS, R. B., 1964. *Physical Review* 136, A437.
- HEISENBERG, W., 1928. *Zeitschrift fur Physik* 49, 619.
- HERPIN, A. 1968. *Theorie du magnetisme*, Presses Universitaires de Grenoble.
- ISING, E., 1925. *Zeitschrift fur Physik* 31, 253.
- KAUFMANN, B., 1949. *Physical Review* 76, 1232.
- KAUL, S. N., 1985. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* 53, 5.
- KUBAT-MARTIN, K. A., FISK, Z. e RYAN, R. R., 1988. *Acta Cryst. Sect. C* 44, 1518.
- MANOUSAKIS, E., 1991. *Reviews of Modern Physics* 63, 1.
- MATSUDA, M., YAMADA, K., KAKURAI, K., KADOWAKI, H., THURSTON, T. R., ENDOH, Y., HIDAKA, Y., BIRGENEAU, R. J., KASTNER, M. A., GEHRING, P. M., MOUDDEN, A. H. e SHIRANE, G., 1990. *Physical Review B* 42, 10098.
- MERMIN, N. D. y WAGNER, H., 1966. *Physical Review Letters* 17, 1133.
- MIRA, J., CASTRO, MAHIA, J., VAZQUEZ VAZQUEZ, C., LOPEZ QUINTELA, M. A., RIVAS, J. y OSEROFF, S. B., 1994a. *Journal of non Cryst. Solids*, 172-174, 491
- MIRA, J., CASTRO, J., RIVAS, J., BALDOMIR, D., VAZQUEZ VAZQUEZ, C., MAHIA, J., LOPEZ QUINTELA, M. A., FIORANI, D., CACIUFFO, R., RINALDI, D., JONES, T. y OSEROFF, S. B., 1994b. *Journal of Applied Physics* 76, 7034.
- MIRA, J., RIVAS, J., FIORANI, D., CACIUFFO, R., RINALDI, D., VAZQUEZ VAZQUEZ, C., MAHIA, J., LOPEZ QUINTELA, M. A. y OSEROFF, S. B., 1995a. *Physical Review B* 52, 16020.
- MIRA, J., RIVAS, J., FIORANI, D., CACIUFFO, R., RINALDI, D., VAZQUEZ VAZQUEZ, C., MAHIA, J., LOPEZ QUINTELA, M. A. y OSEROFF, S. B., 1995b. *Proceedings of the 4th European Ceramic Society Meeting*, vol. 6, 407.
- MIRA, J., 1995c. Tesis doctoral. Universidade de Santiago de Compostela.
- MIRA, J., 1995d. *Revista Real Academia Galega de Ciencias* XIV, 147.
- MIRA, J., RIVAS, J., HORANI, D., CACIUFFO, R., RINALDI, D., VAZQUEZ VAZQUEZ, C., MAHIA, J., LOPEZ QUINTELA, M. A. y OSEROFF, S. B., 1996a. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* 164, 241.
- MIRA, J., RIVAS, J., BUTERA, A., TOVAR, M., VAZQUEZ VAZQUEZ, C., MAHIA, J., LOPEZ QUINTELA, M. A. y OSEROFF, S. B., 1996b. *Journal of Applied Physics* 79, 8612.
- MIRA, J., RIVAS, J., FIORANI, D., CACIUFFO, R., RINALDI, D., VAZQUEZ VAZQUEZ, C., MAHIA, J., LOPEZ QUINTELA, M. A. y OSEROFF, S. B., 1996c. *Journal of Applied Physics* 80, 1674.
- MIRA, J., RIVAS, J., BUTERA, A., TOVAR, M., VAZQUEZ VAZQUEZ, C., MAHIA, J., LOPEZ QUINTELA, M. A. y OSEROFF, S. B., 1996d. *Europhysics Letters* 34, 623.
- MIRA, J., 1997. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* 176, 248.
- MORIYA, T., 1960. *Physical Review* 120, 91.
- ONSAGER, L., 1944. *Physical Review* 65, 117.

OSEROFF, S. B., RAO, D., WRIGHT, F., VIER, D. C., SCHULTZ, S., THOMPSON, J. D., FISK, Z., CHEONG, S.-W., HUNDLEY, M. F. y TOVAR, M., 1990. *Physical Review B* 41, 1934.

ROUCO, A. 1994. Tesis doctoral. Universidad de Barcelona.

ROUCO, A., OBRADORS, X., TOVAR, M., PEREZ, F., CHATEIGNER, D. y BORDET, P., 1994. *Physical Review B* 50, 9924.

SHANTAKUMAR, S., LYNN, J. W., PENG, J. W. y LI, F. Y., 1991. *Journal of Applied Physics* 69, 4866.

SHIRANE, G. et al., 1987. *Physical Review Letters* 59, 1613.

SINGH, A. et al., 1990. *Physical Review Letters* 64, 2571.

SINGH, A. et al., 1991. *Physical Review Letters* 67, 1939.

SOUKOULIS, C. M. et al., 1991. *Physical Review B* 44, 446.

STEPANOV, A. A., WYDER, P., CHATTOPADHYAY, T., BROWN, P. J., FILION, G., VITEBSKY, I. M., DEVILLE, A., GAILLARD, G., BARILO, S. N. y ZHIGUNOV, D. I., 1993. *Physical Review B* 48, 12979.

STEREN, L. B., FAINSTEIN, A., TOVAR, M., ROUCO, A., PEREZ, F., OBRADORS, X., MIRA, J., RIVAS, J., OSEROFF, S. B. y FISK, Z., 1993. *Journal of Applied Physics* 73, 5710.

THIO, T. et al., 1988. *Physical Review B* 38, 905.

THIO, T. y AHARONY, A., 1994. *Physical Review Letters* 73, 894.

THOMPSON, J. D., CHEONG, S.-W., BROWN, S. E., FISK, Z., OSEROFF, S. B., TOVAR, M., VIER, D. C. y SCHULTZ, S., 1989. *Physical Review B* 39, 6660.

THURSTON, T. R., MATSUDA, M., KAKURAI, K., YAMADA, K., ENDOH, Y., BIRGENEAU, R. J., GEHRING, P. M., HIDAKA, Y., KASTNER, M. A., MURAKAMI, T. y SHIRANE, G., 1990. *Physical Review Letters* 65, 263.

VAKNIN, D., SINHA, S. K., STASSIS, C., MILLER, L. L. y JOHNSTON, D. C., 1990. *Physical Review B* 41, 1926.

Van HOVE, L., 1950. *Physica* 16, 137.

WILSON, K. G., 1971. *Physical Review B* 4, 3174.

XUE, W. et al., 1988. *Physical Review B* 38, 6868.

YAMADA, K., KAKURAI, K., ENDOH, Y., THURSTON, T. R., KASTNER, M. A., BIRGENEAU, R. J., SHIRANE, G., HIDAKA, Y. y MURAKAMI, T., 1990. *Physical Review B* 40, 4557.